

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 10-265293

(43)Date of publication of application : 06.10.1998

(51)Int.Cl.

C30B 15/08

C30B 29/30

C30B 29/60

(21)Application number : 09-075328

(71)Applicant : NGK INSULATORS LTD

(22)Date of filing : 27.03.1997

(72)Inventor : IMAEDA MINORU

IMAI KATSUHIRO

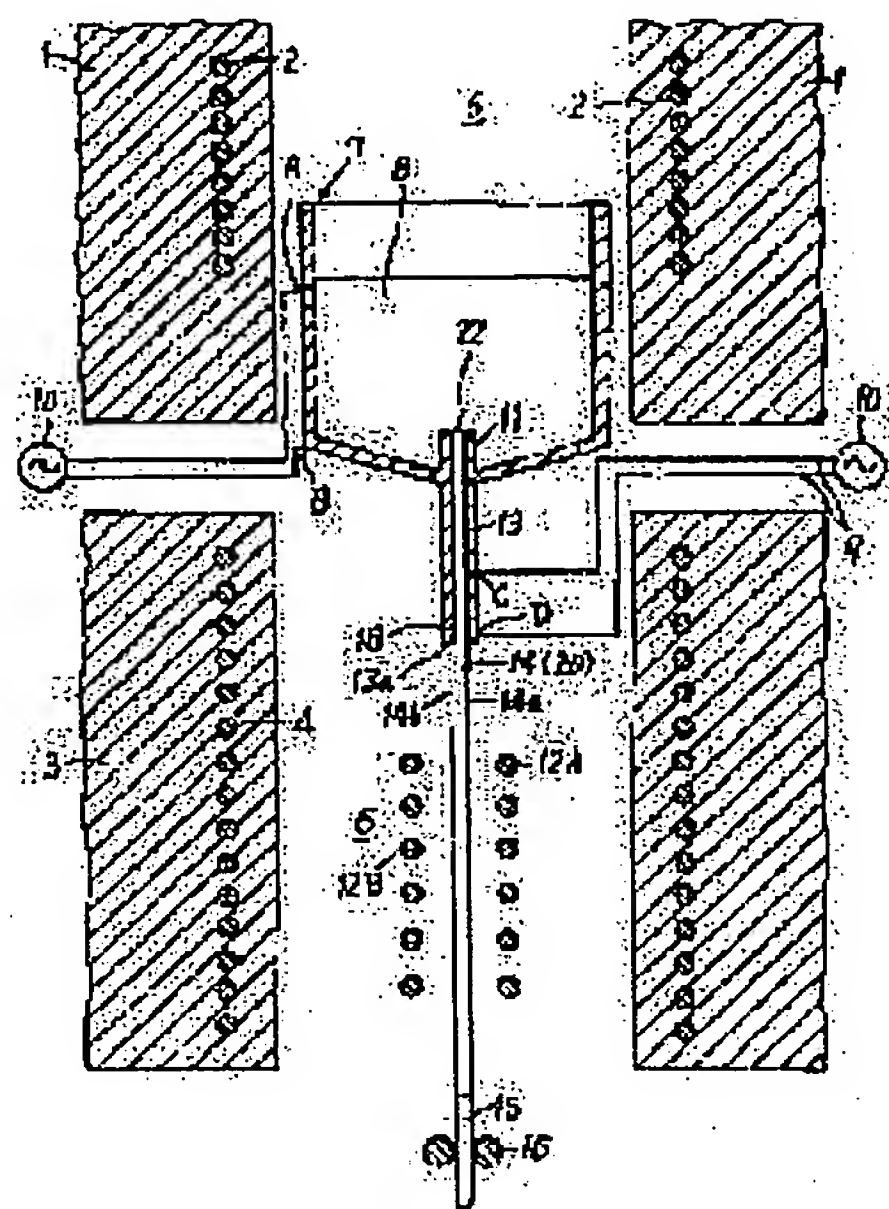
HONDA AKIHIKO

(54) GROWING OF SINGLE CRYSTAL AND DEVICE THEREFOR

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To eliminate the need for forming a single crystal after growth to a single domain by growing the single crystal formed as the single domain at the time of continuously growing the single crystal by a micro-pulling down method.

SOLUTION: The single crystal 14 is formed by cooling the melt of a single crystal material while this material is pulled down from a crucible 7. The single crystal 14 is provided with a temp. gradient near the Curie temp. in the cooling process of the single crystal 14, by which the single crystal is pulled down and the single domain is continuously formed. The device is provided with temp. control mechanisms 12A, 12B for providing the single crystal 14 with the temp. gradient near the Curie temp.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

10.10.2002

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's

BEST AVAILABLE COPY

decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

THIS PAGE BLANK (USPTO)

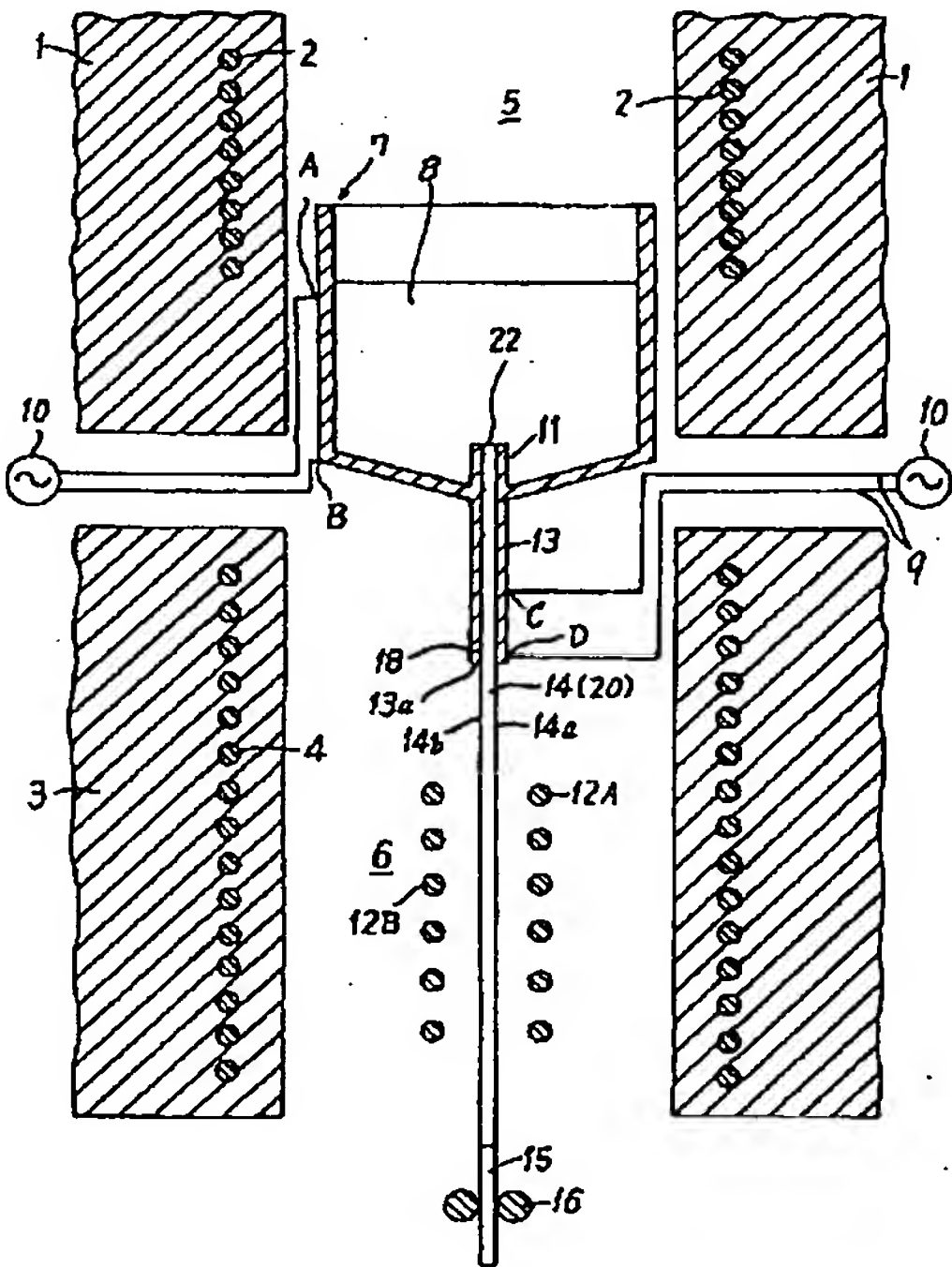
(51)Int.Cl.⁸ 識別記号 F I
C 3 0 B 15/08 C 3 0 B 15/08
29/30 A
29/60 29/60

審査請求 未請求 請求項の数4 O L （全 6 頁）

(21)出願番号	特願平9-75328	(71)出願人	000004064 日本碍子株式会社 愛知県名古屋市瑞穂区須田町2番56号
(22)出願日	平成9年(1997)3月27日	(72)発明者	今枝 美能留 愛知県名古屋市瑞穂区須田町2番56号 日 本碍子株式会社内
		(72)発明者	今井 克宏 愛知県名古屋市瑞穂区須田町2番56号 日 本碍子株式会社内
		(72)発明者	本多 昭彦 愛知県名古屋市瑞穂区須田町2番56号 日 本碍子株式会社内
		(74)代理人	弁理士 杉村 暁秀 （外9名）

(54)【発明の名称】 単結晶の育成方法および装置

(57)【要約】
【課題】 マイクロ引下げ法によって単結晶を連続的に育成するのに際して、単分域化した単結晶を育成しうるようにすることであり、これによって育成後の単結晶を単分域化する必要をなくすることである。
【解決手段】 単結晶材料の熔融物をルツボ7から引下げつつ、冷却して単結晶14を生成させる。単結晶14の冷却過程で、キュリ一点付近において、単結晶14に温度勾配を設けることによって、単結晶を引き下げるのと共に連続的に単分域化させることを特徴とする。キュリ一点付近において単結晶14に温度勾配を設けるための温度制御機構12A、12Bを備えている。



【特許請求の範囲】

【請求項 1】単結晶材料の熔融物をルツボから引下げつつ、冷却して単結晶を生成させる、単結晶の育成方法であって、前記単結晶の冷却過程で、キュリー点付近において前記単結晶に温度勾配を設けることによって、前記単結晶を引き下げるのと共に連続的に単分域化させることを特徴とする、単結晶の育成方法。

【請求項 2】前記単結晶を引き下げる際の前記単結晶の同じ引下げ位置における温度差が、 $10^{\circ}\text{C}\sim 300^{\circ}\text{C}$ であることを特徴とする、請求項 1 記載の単結晶の育成方法。

【請求項 3】前記単結晶が強誘電体であることを特徴とする、請求項 1 記載の単結晶の育成方法。

【請求項 4】単結晶材料の熔融物を収容し、かつ前記熔融物を引き下げるための引出し口を備えているルツボと、前記ルツボ内の前記単結晶材料を熔融させるための熔融加熱機構と、このルツボから前記単結晶を引き下げるための駆動機構とを備えている単結晶の育成装置であって、キュリー点付近において前記単結晶に温度勾配を設けるための温度制御機構を備えていることを特徴とする、単結晶の育成装置。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、マイクロ引下げ法による単結晶の育成方法およびその装置に関するものである。

【0002】

【従来の技術】最近、酸化物単結晶を育成する方法として、いわゆるマイクロ引下げ法によって単結晶ファイバーを形成する方法が注目を集めている。「電総研ニュース」1993年7月号(522号)の4~8頁、特開平4-280891号公報、特開平6-345588号公報には、この方法によってニオブ酸・カリウム・リチウム($\text{K}_3\text{Li}_{2-2x}\text{Nb}_{5+x}\text{O}_{15+x}$ 、以下、 KLN と記載する。)等の単結晶ファイバーを育成した経緯が、開示されている。

【0003】「電総研ニュース」の前記記事によれば、白金製のセルないしルツボに電力を供給し、抵抗加熱する。このセルの底部に、熔融液の引出し口を形成し、この引出し口の中に、融液フィーダーと呼ばれる棒状体を挿通し、これによって熔融液の引出し口への供給量と、固相液相界面の状態とを共に制御する。熔融液引出し口の口径、フィーダーの太さ、引出し口からのフィーダーの突出長さ等を調整することによって、細径の KLN 単結晶ファイバーを連続的に形成している。この μ 引下げ法によれば、直径1mm以下の単結晶ファイバーを形成でき、熱歪みの低減、熔融液内の対流の制御、単結晶ファイバーの直径の制御を容易に行うことができ、特に青色第二高調波発生用に適した小型の高品質単結晶を生産できるという特徴を有している。また、同様にして、青

色第二高調波発生用デバイス、光通信用導波路デバイス、表面弾性波フィルターデバイス用等に用いられる。 LiNbO_3 、 LiTaO_3 等についても、育成が可能であることが知られている。

【0004】また、マイクロ引下げ法における単結晶育成において、従来は、育成した結晶を冷却する過程について、育成直後の歪みによる冷却クラック等の発生を抑えるために、育成点とその近傍の温度制御(温度勾配やアニール等)をすることについては検討されている。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】しかし、例えば LiNbO_3 、 LiTaO_3 、 KLN の様な強誘電体化合物からなる単結晶ファイバーを育成した場合には、得られた単結晶ファイバーが多分域構造となったり、あるいは偶然に単分域構造となったりして、再現性の良い結果が得られないことが判明した。こうした単結晶ファイバーを使用して第二高調波(SHG)発生素子を製造し、そのSHG発生効率等を評価してみると、全体的に大きな効率を得られなかった。このため、いったん育成した単結晶を、別途に単分域処理することが必要不可欠であった。

【0006】しかし、強誘電体単結晶に対して単分域処理を施すには、例えば LiNbO_3 、 LiTaO_3 、 KLN の粉末を媒介させ、白金板電極により電圧を印加することが必要である。この単分域化処理の間に単結晶の結晶性に劣化が生じる。また、電圧を印加するときの条件によっては、単結晶にクラック等が発生するなどのダメージがある。更に、複雑な単分域化処理のためのプロセスを実施する必要がある、全体の製造装置も複雑になる。

【0007】本発明の課題は、マイクロ引下げ法によって単結晶を連続的に育成するのに際して、単分域化した単結晶を育成しうるようにすることであり、これによって育成後の単結晶を単分域化する必要をなくすることである。また、これによって、極めて結晶性の良好な単分域化された単結晶が得られるようにすることである。

【0008】

【課題を解決するための手段】本発明は、単結晶材料の熔融物をルツボから引下げつつ、冷却して単結晶を生成させる、単結晶の育成方法であって、前記単結晶の冷却過程で、キュリー点付近において前記単結晶に温度勾配を設けることによって、前記単結晶を引き下げるのと共に連続的に単分域化させることを特徴とする、単結晶の育成方法に係るものである。

【0009】また、本発明は、単結晶材料の熔融物を収容し、かつ熔融物を引き下げるための引出し口を備えているルツボと、ルツボ内の前記単結晶材料を熔融させるための加熱機構と、このルツボから単結晶を引き下げるための駆動機構とを備えている単結晶の育成装置であって、キュリー点付近において単結晶に温度勾配を設ける

ための加熱機構を備えていることを特徴とする、単結晶の育成装置に係るものである。

【0010】本発明者は、マイクロ引下げ法によって LiNbO_3 、 LiTaO_3 、 KLN 等の単結晶ファイバーを育成する実験、更には特開平 8-259375号公報において開示したように、マイクロ引下げ法によって LiNbO_3 、 LiTaO_3 、 KLN 等の単結晶プレートを連続的に育成するための実験を行ってきた。この研究の過程において、製造条件を一定にして実験を行っても、単結晶ファイバーやプレートの内部が多分域化したり、あるいはほとんど単分域化したりして、その分域構造が一定しないことを発見した。

【0011】本発明者はこの原因を突き止めるべく研究を重ねていたが、ルツボの引出し口から引き下げられた熔融物が冷却されて固化し、更に下方へと引き下げられる過程で、キュリー温度を通過するが、特にこの温度領域で単結晶の周囲の温度が一定しないことが原因であるとの着想を得た。つまり、このときに単結晶内にある程度の温度勾配が発生していると、この温度勾配に従って単分域化が進行し、単結晶内部における温度勾配が少ないか、あるいは存在しないときには、ランダムに分域構造が発生して多分域構造が生成するものと推定した。

【0012】この推定に基づき、実際に少なくともキュリー温度の近辺で、単結晶内に温度勾配が生ずるような条件で加熱機構を制御してみると、単結晶が常に一定して単分域化することを発見し、本発明に到達した。

【0013】具体的には、単結晶それ自体の内部の温度勾配を制御するために、引き下げられている状態の単結晶の両面の温度差が 10°C 以上となるようにすることによって、安定して単分域構造の単結晶を育成できることを見出した。つまり、育成された単結晶プレート等の両面に、 10°C 以上の温度差をつけるようにキュリー点付近の温度勾配を制御することにより、低温側がマイナス面で高温側がプラス面である単分域構造の単結晶が得られることを見いだした。この観点からは、更にこの温度差を 50°C 以上とすることが好ましい。

【0014】一方、この温度差を 300°C 以下とすることによって、単結晶の内部の応力による結晶性の劣化やクラックの発生を防止することができる。この観点から一層単結晶の結晶性を向上させるためには、この温度差を 200°C 以下とすることが好ましい。

【0015】

【発明の実施の形態】本発明の方法および装置は、ファイバー状の単結晶とプレート状の単結晶との双方に対して適用できる。ただし、ファイバー状の単結晶よりも、板状ないしプレート状の単結晶の方が、単分域化が一層確実に進行していた。具体的には、所定条件の下では、育成された単結晶プレートの両面が一層高い確実性、信頼性をもって、マイナスの分極となることがわかった。

【0016】本発明は、固溶体単結晶を製造する場合

に、特に適している。固溶体単結晶としては、例えば、 LiNbO_3 、 LiTaO_3 、 $\text{Li}(\text{Nb}, \text{Ta})\text{O}_3$ 、 KLN ($\text{K}_3\text{Li}_{2-2x}\text{Nb}_{5+x}\text{O}_{15+x}$)、 KLTN [$\text{K}_3\text{Li}_{2-2x}(\text{Ta}_y\text{Nb}_{1-y})_{5+x}\text{O}_{15+x}$]、 $\text{Ba}_{1-x}\text{Sr}_x\text{Nb}_2\text{O}_6$ を中心としたタングステンブロンズの構造を例示することができる。

【0017】 LiNbO_3 、 LiTaO_3 、 KLN 単結晶は、最近、光材料として注目を集めており、特に半導体レーザー用の青色光第二高調波発生 (SHG) 素子用の単結晶として注目されている。これは、 390nm の紫外光領域まで発生することが可能であるので、こうした短波長の光を利用することで、光ディスクメモリー用、医学用、光化学用、各種光計測用等の幅広い応用が可能である。

【0018】また、本発明は、組成偏析する酸化物単結晶の育成に対して適用できる。例えば、 LiNbO_3 に対してネオジムを固溶させる場合、その偏析係数が1でないことによって、熔融物の組成におけるネオジムの量よりも少ない量のネオジムしか単結晶中に入らない。例えば、熔融物内では1.0モル程度のネオジムが含有されていても、単結晶中には0.3モル程度しか入らない。しかし、熔融物をノズル部内で急速に冷却することによって、偏析を招くことなく、熔融物の組成と同様の組成を有する単結晶を製造することができる。これは、他のレーザー単結晶、例えば、 Nd 、 Er 、 Yb によって置換されたYAG、 Nd 、 Er 、 Yb によって置換されたYVO₄に対しても、適用することができる。

【0019】本発明において、単結晶、特に酸化物単結晶の育成方法は、マイクロ引下げ法であれば特に限定はされない。ただし、育成装置が、キュリー点付近において、単結晶に温度勾配を設けるための温度制御機構を備えていることが必要である。こうした単結晶のキュリー点付近における温度制御は、具体的にはキュリー点 $\pm 150^\circ\text{C}$ の範囲内で実施する必要がある。こうした温度制御機構も特に限定はされないが、量産性の観点からは次のものを好適に例示できる。

【0020】(1) 育成炉の下部の冷却ゾーンにおいて、単結晶プレートの左右にそれぞれヒーターを設ける。各ヒーターにおいては、それぞれヒーターの上下方向における各部分の温度勾配を、自由に設定できる構造とする。

【0021】(2) 育成炉の下部の冷却ゾーンにおいて、単結晶プレートの左右にそれぞれヒーターを設ける。そして、単結晶の一方の面側では、このヒーターの外側に補助ヒーターを設け、補助ヒーターを発熱させることによって、単結晶の一方の面側の温度を、これと反対側の他方の面側の温度よりも 10°C 以上高くする。

【0022】(3) 育成炉の下部の冷却ゾーンにおいて、単結晶プレートの左右にそれぞれヒーターを設ける。ヒーターと単結晶の一方の面側との間隔を相対的に

小さくし、ヒーターと単結晶とを近づける。これと共に、ヒーターと単結晶の他方の面側との間隔を相対的に大きくし、ヒーターと単結晶とを遠ざける。これによって、単結晶の一方の面側の温度を、これと反対側の他方の面側の温度よりも 10°C 以上高くする。

【0023】なお、単結晶ファイバーの場合にも(1)～(3)の方法を採用できる。

【0024】

【実施例】以下、図面を参照しつつ、更に詳細に本発明の実施例を説明する。図1は、単結晶育成用の製造装置を示す概略断面図である。

【0025】炉体の内部には、ルツボ7が設置されている。ルツボ7およびその上側空間5を包囲するように、上側炉1が設置されており、上側炉1内にはヒーター2が埋設されている。ルツボ7の下端部から下方向へと向かってノズル部13が延びており、ノズル部13の下端部に引出し口13aが形成されている。ノズル部13およびその周囲の空間6を包囲するように下側炉3が設置されており、下側炉3の中にヒーター4が埋設されている。ルツボ7およびノズル部13は、いずれも耐食性の導電性材料によって形成されている。むろんこの加熱炉の形態自体は、種々変更することができ、例えば図1においては加熱炉を2ゾーンに分割しているが、加熱炉を3ゾーン以上に分割することもできる。

【0026】ルツボ7の位置Aに対して、電源10の一方の電極が電線9によって接続されており、ルツボ7の下端Bに対して、電源10の他方の電極が接続されている。ノズル部13の位置Cに対して、電源10の一方の電極が電線9によって接続されており、ノズル部13の下端Dに対して他方の電極が接続されている。これらの各通電機構は、共に分離されており、独立してその電圧を制御できるように構成されている。

【0027】ルツボ7内で、取り入れ管11が上方向へと向かって延びており、この取り入れ管11の上端に取り入れ口22が設けられている。この取り入れ口22は、熔融物8の底部から若干突き出している。この熔融物の取り入れ口は、ルツボの底部から突き出さないように、ルツボの底に形成することもできる。この場合には、取り入れ管11は設けない。ノズル部13を包囲するように、間隔を置いて、空間6内にアフターヒーターを設けることができる。

【0028】上側炉1、下側炉3およびアフターヒーターを発熱させて空間5、6の温度分布を適切に定め、熔融物の原料をルツボ7内に供給し、ルツボ7およびノズル部13に電力を供給して発熱させる。この状態では、ノズル部13の下端部にある単結晶育成部18では、開口13aから熔融物が僅かに突出し、その表面張力によって保持されて、比較的平坦な表面が形成されている。

【0029】この結果、種結晶15の上側に単結晶プレ

ート14が連続的に形成され、下方向へと向かって引き出されてくる。本実施例では、この種結晶15および単結晶プレート14を、ローラー16によって送っている。

【0030】単結晶プレート14は、ノズル部13から下へと向かうのにつれて冷却されていくが、本実施例では、更に単結晶プレート14の両側にヒーター12A、12Bが設置されている。この領域を通過する間の単結晶プレート14の温度は、通常キュリー温度 $\pm 200^{\circ}\text{C}$ 以内、好ましくは 150°C 以内となるように設定されている。各ヒーター12A、12Bの各温度を制御することによって、単結晶14の一方の面14aと14bとの温度差を前記のように調整する。

【0031】図2(a)はこの単結晶14の側面図であり、図2(b)は平面図である。このプレート14は、例えば、矢印E方向へと単分域化した状態で育成される。

【0032】なお、図1において単結晶ファイバー20を育成させた場合にも、図2(c)に示すようにファイバー20内で矢印E方向へと単分域化する。

【0033】図3は、他の実施例に係る製造装置を概略的に示す概略断面図である。図1の装置と同じ部分には同じ符号を付け、その説明は省略する。また、図1に示した上側炉、下側炉といった周辺部分は、図3においては図示を省略した。図3の装置においては、ルツボ7の上端Fと略中央部Gとに対して、電源10Aの電極が接続されており、ルツボ7の略中央部Gと下端部Hとに対して、電源10Bの電極が接続されており、ルツボ7の下端部Hとノズル部の上端部Iとに対して、交流電源10Cの電極が接続されている。ノズル部13に対しては、交流電源10Dが接続されている。これらの各通電機構は、共に分離されており、独立してその電圧を制御できるように構成されている。

【0034】単結晶プレート14は、ノズル部13から下へと向かうのにつれて冷却されていくが、本実施例では、更に単結晶プレート14の両側にヒーター12A、12Bが設置されている。この領域を通過する間の単結晶プレート14の温度は、通常キュリー温度 $\pm 200^{\circ}\text{C}$ 以内、好ましくは 150°C 以内となるように設定されている。更にヒーター12Aの外側に補助ヒーター19を設けてある。各ヒーター12A、12B、19の各温度を制御することによって、単結晶14の一方の面14aと14bとの温度差を前記のように調整する。

【0035】また、図4は、本発明の他の実施例に係る装置を示す模式的断面図であり、図3に示した部材と同じ部材には同じ符号を付ける。単結晶プレート14の両側にヒーター25A、25Bが設置されている。この領域を通過する間の単結晶プレート14の温度は、通常キュリー温度 $\pm 200^{\circ}\text{C}$ 以内、好ましくは 150°C 以下となるように設定されている。単結晶プレート14の一方

の面 14 a 側では、プレート 14 とヒーター 25 A との距離 m を相対的に小さくし、プレート 14 の他方の面 14 b 側では、プレート 14 とヒーター 25 B との距離 l を相対的に大きくする。これによって、面 14 a と面 14 b との温度差を一定範囲に調節することができる。

【0036】次に、単結晶プレートを製造するために特に好適なノズル部の形態について説明する。本発明者は、 μ 引下げ法において、ノズル部の先端に、単結晶プレートの横断面に対応する平面形状の平坦面を形成し、このノズル部に複数列の溶融物流通孔を形成し、各溶融物流通孔から同時に溶融物を引き下げ、各流通孔から引き下げられた溶融物を平坦面に沿って一体化することによって単結晶プレートを形成できることを確認した。

【0037】この態様においては、ノズル部の全体を平板形状とすることができる。また、管状のノズル部の先端に拡張部を設け、この拡張部の先端面を前記のような平坦面とすることができる。または、ノズル部を複数の管状部材によって構成し、各管状部材を互いに接合して一体化し、各管状部材の先端面によって一体の平坦面を形成することができる。

【0038】

【実施例】以下、更に具体的な実験結果について述べる。図 1 に示すような単結晶製造装置を使用し、本発明に従って、 LiNbO_3 単結晶プレート 14 を製造した。上側炉 1 と下側炉 3 とによって炉内全体の温度を制御した。ノズル部 13 に対する電力供給とアフターヒーターの発熱とによって、単結晶育成部 18 近辺の温度勾配を制御できるように構成した。単結晶プレート 14 の引下げ機構としては、垂直方向に 2 ~ 100 mm/時間の範囲内で、引下げ速度を均一に制御しながら、単結晶プレート 14 を引き下げる機構を搭載した。

【0039】炭酸リチウムおよび酸化ニオブを、50 : 50 の組成比率で調合して原料粉末を製造した。この原料粉末約 50 g を、白金製のルツボ 7 内に供給し、このルツボ 7 を所定位置に設置した。上側炉 1 内の空間 5 の温度を 1250 ~ 1350 °C の範囲に調整し、ルツボ 7 内の原料を融解させた。下側炉 3 内の空間 6 の温度は、700 °C ~ 1000 °C に制御した。ルツボ 7、ノズル部 13 およびアフターヒーターに対して所定の電力を供給し、単結晶成長を実施した。この際、単結晶育成部の温度を 1200 °C ~ 1300 °C とすることができ、単結晶育成部における温度勾配を 10 ~ 150 °C/mm に制御することができた。

【0040】ノズル部 13 の外側の横断面の形状は長方形とし、その寸法は 1.0 mm × 30 mm とした。ノズル部 13 の長さは 20 mm とした。ノズル部 13 内に溶融物流通孔を 30 個設けた。各溶融物流通孔の直径は

0.2 mm とした。ルツボ 7 の平面形状は円形とし、その直径は 30 mm とし、その高さは 30 mm とした。

【0041】単結晶プレート 14 の面 14 a と 14 b との温度差を 50 °C に設定した。幅 50 mm、厚さ 1.0 mm の単結晶プレートを、20 mm/時間の速度で a 軸方向に引き下げた。1150 °C 付近から 1000 °C 付近まで冷却する 80 mm の冷却ゾーンを設け、育成速度 20 mm/時間で約 4 時間かけてこのゾーンを通過させた。

【0042】また、この単結晶プレートを、フッ化水素酸と硝酸との 3 : 1 混合液で、180 °C で 1 時間、加熱分解した。この結果、プラス側が全くエッチングされていないのに対し、マイナス側が約 10 μ m エッチングされており、結晶性の悪い部分ではエッチピットが認められた。この結果、完全な単分域の結晶が得られていることを確認した。

【0043】また、この LiNbO_3 単結晶の SHG 発生効率を測定したところ、従来の単分域化処理を施した単結晶と比較して、約 30 % 向上していた。この原因としては、基板の歪みの減少、例えば X 線ロッキングカーブが半値幅で約 20 % 小さくなって結晶性が向上したことが関連している。

【0044】

【発明の効果】以上述べたように、本発明によれば、マイクロ引下げ法によって単結晶を連続的に育成するのの際して、単分域化した単結晶を育成でき、育成後の単結晶の単分域化処理を不要にできる。これによって、極めて結晶性の良好な単分域化された単結晶が得られるようになった。

【図面の簡単な説明】

【図 1】本発明の実施例に係る、単結晶育成用の製造装置を示す概略断面図である。

【図 2】(a) は、単結晶プレート 14 の側面図であり、(b) は単結晶プレート 14 の平面図であり、(c) は、単結晶ファイバー 20 の断面図である。

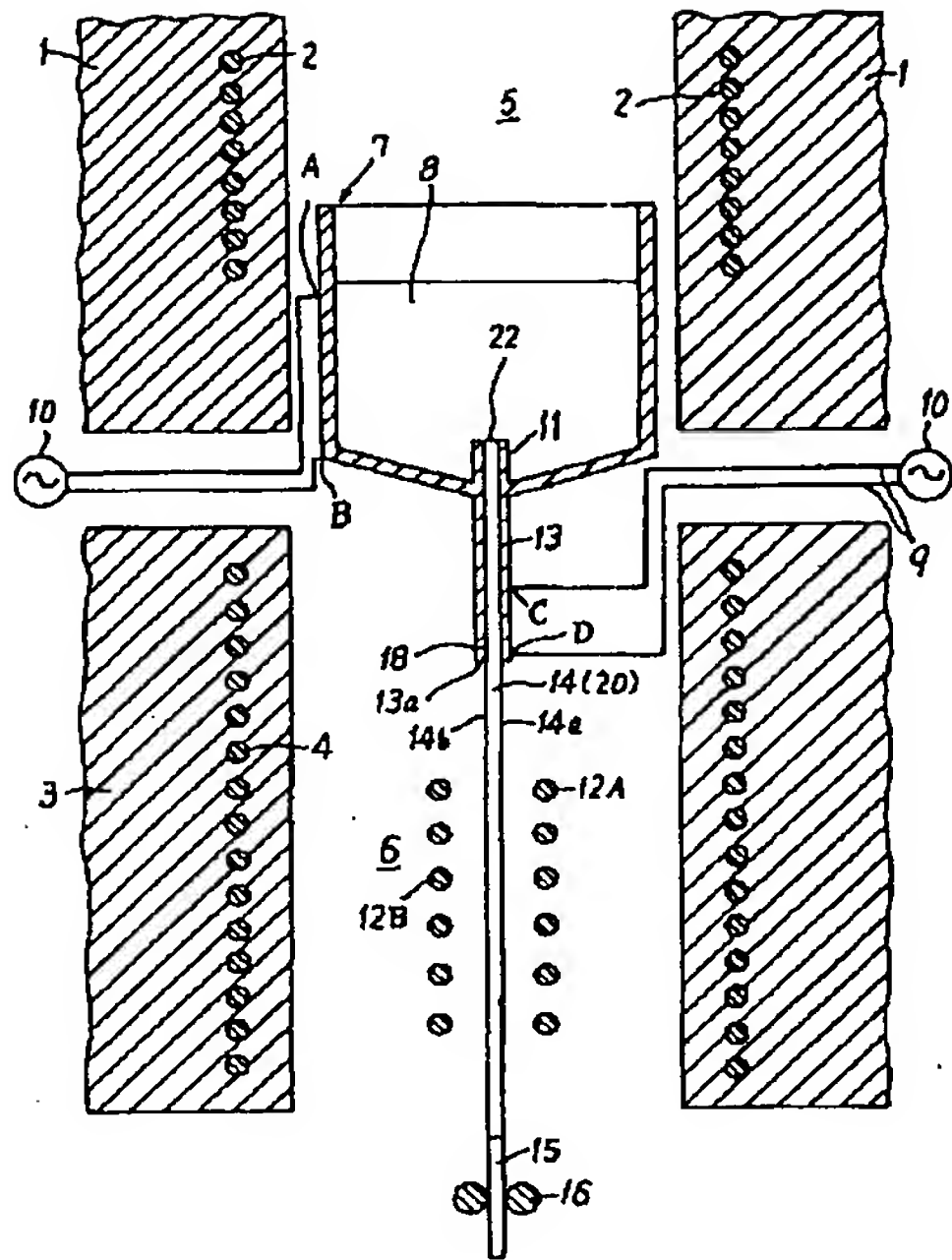
【図 3】本発明の他の実施例に係る単結晶育成用の製造装置の要部を示す概略断面図である。

【図 4】本発明の更に他の実施例に係る単結晶育成用の製造装置の要部を示す概略断面図である。

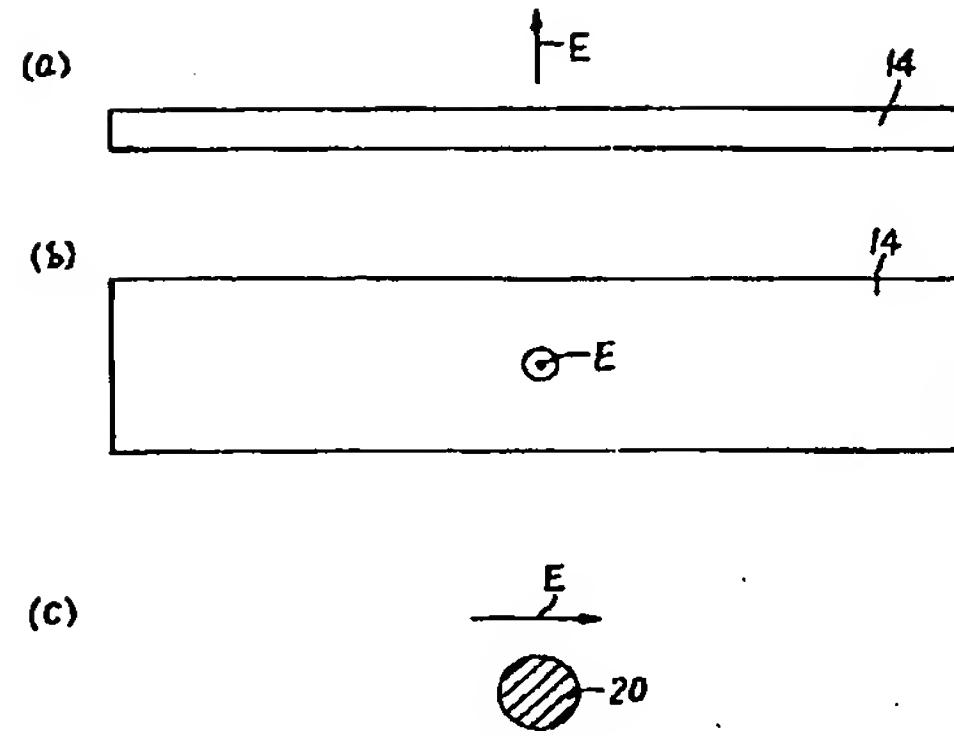
【符号の説明】

1 上側炉、2 上側炉 1 のヒーター、3 下側炉、4 下側炉 3 のヒーター、7 ルツボ、10、10 A、10 B、10 C、10 D 電源、12 A、12 B 2 ゾーンヒーター、13 ノズル部、13 a 引出し口、14 単結晶プレート、15 種結晶、18 単結晶育成部、20 単結晶ファイバー、19 補助ヒーター、25、25 A ヒーター

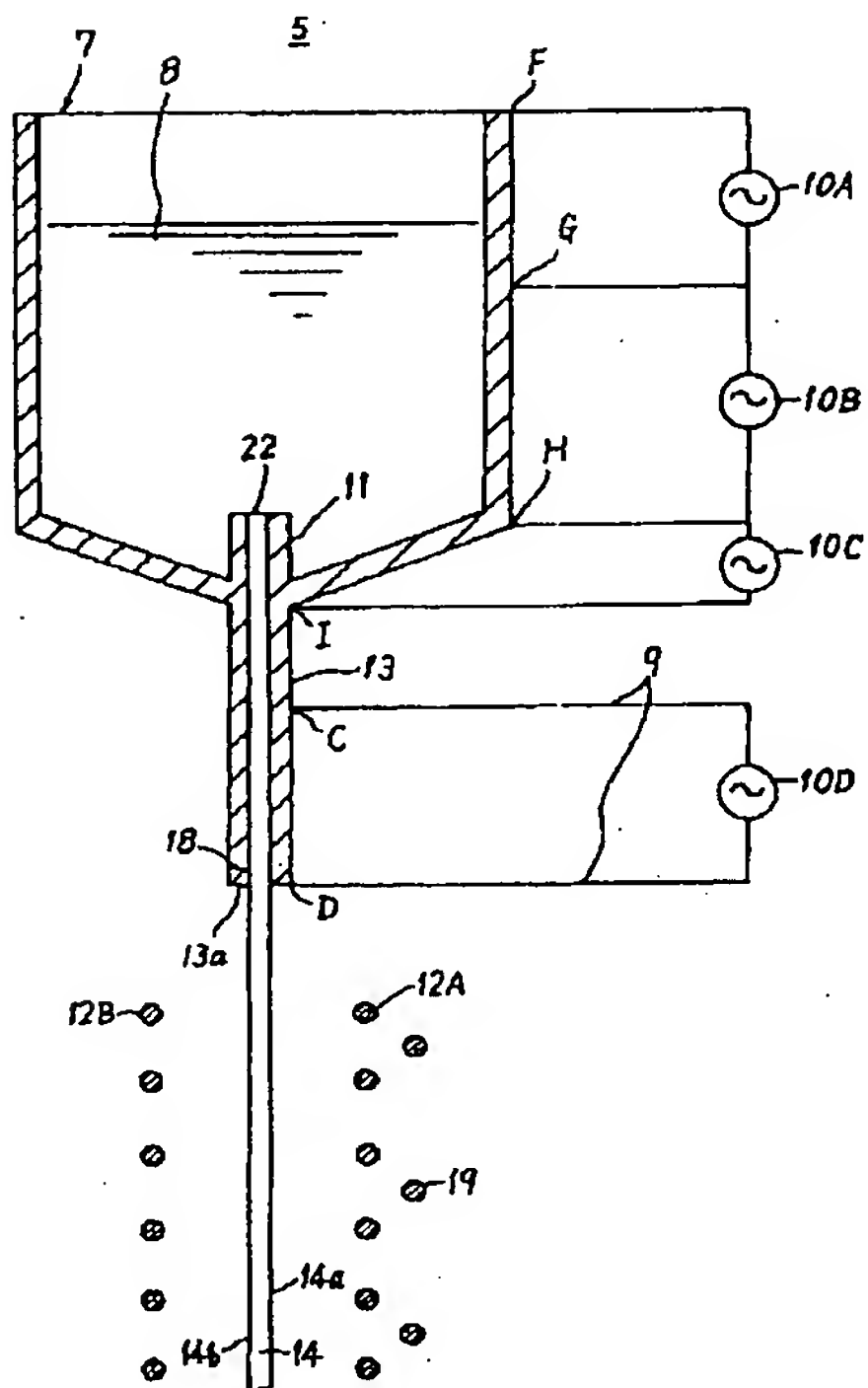
【図 1】



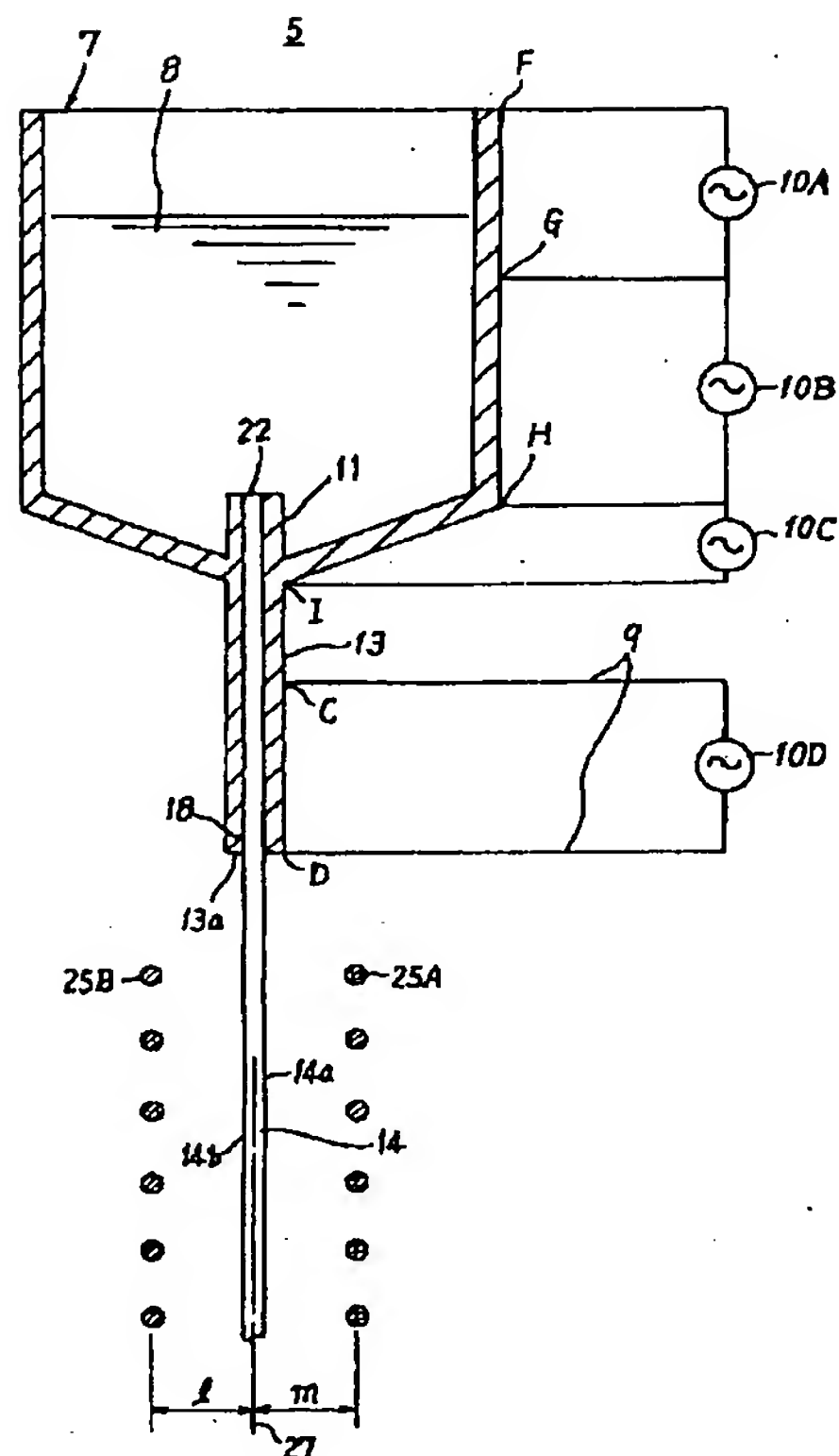
【図 2】



【図 3】



【図 4】



**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☒ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☒ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☒ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☒ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.